

JP2001196038A

2001-7-19

**Bibliographic Fields**

**Document Identity**

(19)【発行国】  
日本国特許庁(JP)  
(12)【公報種別】  
公開特許公報(A)  
(11)【公開番号】  
特開2001-196038(P2001-196038  
A)  
(43)【公開日】  
平成13年7月19日(2001. 7. 19)

(19) [Publication Office]  
Japan Patent Office (JP)  
(12) [Kind of Document]  
Unexamined Patent Publication (A)  
(11) [Publication Number of Unexamined Application]  
Japan Unexamined Patent Publication 2001 - 196038 (P2001 -  
196038A )  
(43) [Publication Date of Unexamined Application]  
Heisei 13 year July 19 day (2001.7 . 19)

**Public Availability**

(43)【公開日】  
平成13年7月19日(2001. 7. 19)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]  
Heisei 13 year July 19 day (2001.7 . 19)

**Technical**

(54)【発明の名称】  
非水電解質電池封ロガasket用樹脂組成物、  
ガasket及び非水電解質電池

(54) [Title of Invention]  
**RESIN COMPOSITION, GASKET AND  
NONAQUEOUS ELECTROLYTE BATTERY FOR  
NONAQUEOUS ELECTROLYTE BATTERY SEALING  
GASKET**

(51)【国際特許分類第7版】

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

H01M 2/08

H01M 2/08

C08L 67/00

C08L 67/00

69/00

69/00

71/12

71/12

77/00

77/00

81/00

81/00

C09K 3/10

C09K 3/10

【FI】

[FI]

H01M 2/08 S

H01M 2/08 S

C08L 67/00

C08L 67/00

69/00

69/00

71/12

71/12

77/00

77/00

81/00

81/00

C09K 3/10

C09K 3/10

JP2001196038A

2001-7-19

【請求項の数】

5

【出願形態】

OL

【全頁数】

10

【テーマコード(参考)】

4H0174J0025H011

【Fターム(参考)】

4H017 AA04 AA31 AB01 AB13 AB14 AB17  
AC16 AD01 AE05 4J002 AE053 BN15W BP013  
CF023 CF06W CF07W CF16W CG00W  
CH07W CL003 CL01X CL03X CL05X CN01W  
CN03W EC036 EC066 EF046 EF056 EF066  
EF076 EL026 EL146 EU026 EU186 EV236  
EX036 EX076 FD203 FD206 5H011 AA02  
AA10 FF04 HH02 KK01 KK02

Filing

【審査請求】

未請求

(21)【出願番号】

特願2000-4542(P2000-4542)

(22)【出願日】

平成12年1月13日(2000. 1. 13)

Parties

Applicants

(71)【出願人】

【識別番号】

000002093

【氏名又は名称】

住友化学工業株式会社

【住所又は居所】

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

Inventors

(72)【発明者】

【氏名】

森富 悟

[Number of Claims]

5

[Form of Application]

OL

[Number of Pages in Document]

10

[Theme Code (For Reference)]

4 H0174J0025H011

[F Term (For Reference)]

4 H017 AA04 AA31 AB01 AB13 AB14 AB17 AC16 AD01  
AE05 4J002 AE053 BN15W BP0 <SP>13</SP>C F023  
CF06W CF07W CF16W CG00W CH07W CL003 CL01X  
CL03X CL05X CN01W CN03W EC 036 EC 066 EF046  
EF056 EF066 EF076 EL026 EL146 EU 026 EU 186 EV236  
EX036 EX076 FD203 FD206 5H011 AA02 AA10 FF04  
HH02 KK01 KK02

[Request for Examination]

Unrequested

(21) [Application Number]

Japan Patent Application 2000 - 4542 (P2000 - 4542 )

(22) [Application Date]

2000 January 13 days (2000.1 . 13)

(71) [Applicant]

[Identification Number]

000002093

[Name]

SUMITOMO CHEMICAL CO. LTD. (DB 69-053-5307 )

[Address]

Osaka Prefecture Osaka City Chuo-ku Kitahama 4-5-33

(72) [Inventor]

[Name]

Forest wealth Satoru

JP2001196038A

2001-7-19

【住所又は居所】

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

[Address]

Inside of Chiba Prefecture Ichihara City Anesaki Kaigan 5-1  
Sumitomo Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-5307)

Agents

(74)【代理人】

【識別番号】

100093285

【弁理士】

【氏名又は名称】

久保山 隆 (外2名)

(74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

[Identification Number]

100093285

[Patent Attorney]

[Name]

Kuboyama Takashi (2 others)

Abstract

(57)【要約】

(修正有)

【課題】

非水電解質電池の金属ケース(正極管)と封口板(負極端子板)の間を絶縁状態に密閉する封口ガスケットであって、耐熱性及び耐水性に優れたガスケットを提供することができる樹脂組成物を提供する。

(57) [Abstract]

(There is an amendment.)

[Problems to be Solved by the Invention]

metal case of nonaqueous electrolyte battery (positive electrode tube) with with sealing gasket which closes airtightbetween sealing plate (negative electrode terminal sheet) in insulating state, resin composition which can offer gasket which is superior in heat resistance and water resistance is offered.

【解決手段】

下記の成分(A)~(C)を熔融混練して得られ、(A)及び(B)の合計量100重量部あたりの(C)の含量が0.01~10重量部である非水電解質電池封口ガスケット用樹脂組成物。

[Means to Solve the Problems]

Below-mentioned component (A) - melt mixing doing (C), it is acquired, resin composition. for nonaqueous electrolyte battery sealing gasket where content of (C) of total amount per 100 parts by weight of (A) and (B) is 0.01 - 10 parts by weight

(A):ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリブチレンテレフタレート系樹脂、ポリフェニレンサルファイド系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリアリレート系樹脂及びアクリロニトリル-スチレン-ブタジエン系樹脂から選ばれた少なくとも一種の熱可塑性樹脂

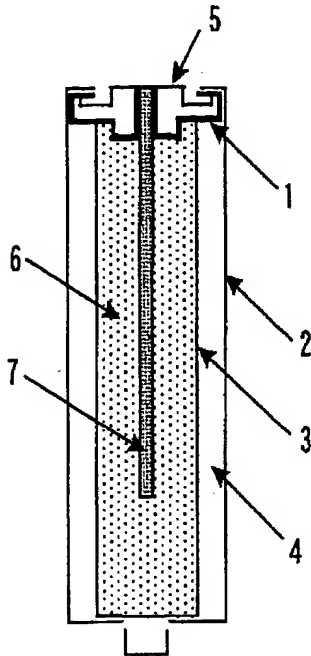
thermoplastic resin of at least one kind which is chosen from (A):polyphenylene ether-based resin、 polycarbonate resin、 polyethylene terephthalate-based resin、 polybutylene terephthalate-based resin、 polyphenylene sulfide-based resin、 polysulfone type resin、 polyether sulfone resin、 polyarylate resin and acrylonitrile-styrene-butadiene resin

(B):ポリアミド系樹脂

(B):polyamide resin

(C):相容化剤

(C):compatibilizer



# Claims

## 【特許請求の範囲】

### 【請求項 1】

下記の成分(A)~(C)を溶融混練して得られ、(A)/(B)の重量比が10/90~60/40であり、(A)及び(B)の合計量 100 重量部あたりの(C)の含量が0.01~10 重量部であり、かつ(B)が連続相を形成し、(A)が分散相を形成している非水電解質電池封ロガスケット用樹脂組成物。

(A):ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリブチレンテレフタレート系樹脂、ポリフェニレンサルファイド系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリアリレート系樹脂及びアクリロニトリル-スチレン-ブタジエン系樹脂から選ばれた少なくとも一種の熱可塑性樹脂

(B):ポリアミド系樹脂

(C):相容化剤

### 【請求項 2】

(A)がポリフェニレンエーテル系樹脂である請求項 1 記載の樹脂組成物。

## [Claim(s)]

### [Claim 1]

Below-mentioned component (A) - melt mixing doing (C), it is acquired, (A) / weight ratio of (B) with 10/90 - 60/40, content of (C) of total amount per 100 parts by weight of (A) and (B) with 0.01 - 10 parts by weight, at same time (B) forms continuous phase, resin composition. for nonaqueous electrolyte battery sealing gasket where (A) forms dispersed phase

thermoplastic resin of at least one kind which is chosen from (A): polyphenylene ether-based resin, polycarbonate resin, polyethylene terephthalate-based resin, polybutylene terephthalate-based resin, polyphenylene sulfide-based resin, polysulfone type resin, polyether sulfone resin, polyarylate resin and acrylonitrile-styrene-butadiene resin

(B): polyamide resin

(C): compatibilizer

### [Claim 2]

resin composition. which is stated in Claim 1 where (A) is polyphenylene ether-based resin

## 【請求項 3】

樹脂組成物中の(A)からなる分散粒子の直径の平均値が $5\mu\text{m}$ 以下である請求項 1 又は請求項 2 記載の樹脂組成物。

## 【請求項 4】

請求項 1、請求項 2 又は請求項 3 記載の樹脂組成物を用いて得られる非水電解質電池封口ガスケット。

## 【請求項 5】

請求項 4 記載のガスケットを用いた非水電解質電池。

## Specification

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、非水電解質電池封口ガスケット用樹脂組成物、ガスケット及び非水電解質電池に関するものである。

更に詳しくは、本発明は、非水電解質電池の金属ケース(正極管)と封口板(負極端子板)の間を絶縁状態に密閉する封口ガスケットであって、耐熱性及び耐水性に優れたガスケットを提供することができる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いて得られる非水電解質電池封口ガスケット及び該ガスケットを用いた非水電解質電池に関するものである。

## 【0002】

## 【従来の技術】

非水電解質電池に用いる封口ガスケットの樹脂としては、ポリプロピレン樹脂あるいはポリアミド樹脂が用いられている。

ポリプロピレン樹脂は、耐水性、耐寒性、耐薬品性に優れているものの、耐熱性が低いため、高温雰囲気下で変形が生じる。

そのため、ポリプロピレン樹脂からなる封口ガスケットを電池に組み付けた場合、電池がショートした際の発熱により、局所的に  $100\text{ deg C}$  以上に温度が上昇し、ガスケットに変形が生じ、特にカシメ部分の変形によりわずかな隙間が生じて漏液経路が形成され、保存中に漏液を生じる原因となっていた。

また、ポリアミド樹脂は耐寒性、耐薬品性、耐熱

## [Claim 3]

resin composition. which is stated in Claim 1 or Claim 2 where mean of diameter of dispersed particle which consists of (A) in resin composition is  $5\mu\text{m}$  or less

## [Claim 4]

nonaqueous electrolyte battery sealing gasket which is acquired making use of resin composition which is stated in Claim 1, Claim 2 or Claim 3.

## [Claim 5]

nonaqueous electrolyte battery. which uses gasket which is stated in Claim 4

## [Description of the Invention]

## [0001]

## [Technological Field of Invention]

this invention is resin composition, gasket for nonaqueous electrolyte battery sealing gasket and something regarding nonaqueous electrolyte battery.

Furthermore as for details, as for this invention, metal case of nonaqueous electrolyte battery (positive electrode tube) with with sealing gasket which closes airtight between sealing plate (negative electrode terminal sheet) in insulating state, it is something regarding nonaqueous electrolyte battery sealing gasket which is acquired making use of resin composition, said resin composition which can offer gasket which is superior in heat resistance and water resistance and nonaqueous electrolyte battery which uses said gasket.

## [0002]

## [Prior Art]

polypropylene resin or polyamide resin is used as resin of sealing gasket which is used for nonaqueous electrolyte battery.

As for polypropylene resin, although it is superior in water resistance, cold resistance, chemical resistance, because the heat resistance is low, deformation occurs under hot atmosphere.

Because of that, when sealing gasket which consists of polypropylene resin was attached to battery, case where battery shorts in localized temperature rose in  $100\text{ deg C}$  or greater with heat emission, deformation occurred in gasket, little gap occurring due to deformation of the especially crimp portion, leaked liquid path was formed, while retaining had become the cause which causes leaked liquid.

In addition, polyamide resin although it is superior in cold

性に優れるものの、吸湿性を有するため、成形加工後の保存雰囲気下で水分を吸収し、その度合いに応じた寸法変化が生じる。

そのため、ナイロン樹脂からなる封口ガasketを電池に組み付けた場合、電池内部に含まれる微量水分、あるいは外気中の水分の影響を受けて寸法変化が生じ、特にカシメ部分の寸法変化によりわずかな隙間が生じて漏液経路が形成され、保存中に漏液を生じる原因となっていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明が解決しようとする課題は、非水電解質電池の金属ケースと封口板の間を絶縁状態に密閉する封口ガasketであって、耐熱性及び耐水性に優れたガasketを提供することができる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いて得られる非水電解質電池封口ガasket及び該ガasketを用いた非水電解質電池を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】

すなわち、本発明のうち第一の発明は、下記の成分(A)~(C)を熔融混練して得られ、(A)/(B)の重量比が 10/90~60/40 であり、(A)及び(B)の合計量 100 重量部あたりの(C)の含量が 0.01~10 重量部であり、かつ(B)が連続相を形成し、(A)が分散相を形成している非水電解質電池封口ガasket用樹脂組成物に係るものである。

(A):ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリブチレンテレフタレート系樹脂、ポリフェニレンサルファイド系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリアリレート系樹脂及びアクリロニトリル-スチレン-ブタジエン系樹脂から選ばれた少なくとも一種の熱可塑性樹脂

(B):ポリアミド系樹脂

(C):相容化剤

また、本発明のうち第二の発明は、上記の樹脂組成物を用いて得られる非水電解質電池封口ガasketに係るものである。

更に、本発明のうち第三の発明は、上記のガasketを用いた非水電解質電池に係るものである。

resistance、chemical resistance、heat resistance、in order to possess moisture absorption, absorbs moisture under retention atmosphere after molding and fabrication, dimensional deformation which responds to extent occurs.

Because of that, when sealing gasket which consists of nylon resin was attached to battery, receiving influence of moisture in the trace amount moisture、or external air which is included in battery internal, dimensional deformation occurred, little gap occurring due to dimensional deformation of especially crimp portion, leaked liquid path was formed, while retaining had become cause which causes leaked liquid.

【0003】

【Problems to be Solved by the Invention】

Problem That This Invention Seeks to Solve with metal case of nonaqueous electrolyte battery and sealing gasket which closes airtight between sealing plate in insulating state, is to offer nonaqueous electrolyte battery sealing gasket which is acquired making use of resin composition、said resin composition which can offer gasket which is superior in heat resistance and water resistance and nonaqueous electrolyte battery which uses said gasket.

【0004】

【Means to Solve the Problems】

Invention of inside first of namely, this invention is acquired, the below-mentioned component (A) - melt mixing doing (C), (A) / weight ratio of (B) with 10/90 - 60/40, content of (C) of total amount per 100 parts by weight of (A) and (B) with 0.01 - 10 parts by weight, at same time (B) forms the continuous phase, it is something which relates to resin composition for nonaqueous electrolyte battery sealing gasket where (A) forms dispersed phase.

thermoplastic resin of at least one kind which is chosen from (A): polyphenylene ether-based resin、polycarbonate resin、polyethylene terephthalate-based resin、polybutylene terephthalate-based resin、polyphenylene sulfide-based resin、polysulfone type resin、polyether sulfone resin、polyarylate resin and acrylonitrile-styrene-butadiene resin

(B): polyamide resin

(C): compatibilizer

In addition, inside second invention of this invention is something which relates to nonaqueous electrolyte battery sealing gasket which is acquired making use of the above-mentioned resin composition.

Furthermore, inside third invention of this invention is something which relates to nonaqueous electrolyte battery

る。

【0005】

【発明の実施の形態】

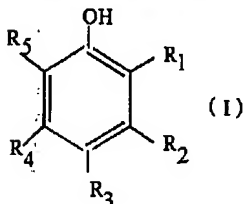
本発明で用いられる成分(A)は、ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリブチレンテレフタレート系樹脂、ポリフェニレンサルファイド系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリアリレート系樹脂及びアクリロニトリル-スチレン-ブタジエン樹脂から選ばれた少なくとも一種の熱可塑性樹脂である。

成分(A)は、ポリアミド樹脂中に分散相として存在し、ポリアミド樹脂の吸湿性を向上させる。

これらの中では、ポリフェニレンエーテル系樹脂が、成形性、耐熱性、機械的強度といった観点から、好ましい。

【0006】

ポリフェニレンエーテル系樹脂とは、下式(II)で表されるフェノール化合物の少なくとも一種を酸化カップリング触媒によって、酸素又は酸素含有ガスで酸化重合させて得られる(共)重合体からなる樹脂を意味する。



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  及び  $R_5$  は、それぞれ水素原子、炭化水素基又は置換炭化水素基から選ばれたものであり、そのうち必ず 1 個は水素原子である。)

【0007】

式(I)における $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  及び  $R_5$ としては、水素、メチル、エチル、*n*-又は *iso*-プロピル、*pri*-、*sec*-又は *t*-ブチル、ヒドロキシエチル、フェニルエチル、ベンジル、ヒドロキシメチル、カルボキシエチル、メトキシカルボニルエチル、シアノエチル、フェニル、メチルフェニル、ジメチルフェニル、エチルフェニル、アリルを例示することができる。

【0008】

式(I)で表されるフェノール化合物として、フェノール、*o*-、*m*-又は *p*-クレゾール、2,6-、2,5-、2,4-又は 3,5-ジメチルフェノール、2-メチル-6-フェニ

which uses above-mentioned gasket.

【0005】

[Embodiment of the Invention]

component (A) which is used with this invention is thermoplastic resin of at least one kind which is chosen from polyphenylene ether-based resin, polycarbonate resin, polyethylene terephthalate-based resin, polybutylene terephthalate-based resin, polyphenylene sulfide-based resin, polysulfone type resin, polyether sulfone resin, polyarylate resin and acrylonitrile-styrene-syndiotactic 1,2-polybutadiene.

component (A) exists in polyamide resin as dispersed phase, moisture absorption of polyamide resin improves.

Among these, polyphenylene ether-based resin, from viewpoint such as moldability, heat resistance, mechanical strength, is desirable.

【0006】

polyphenylene ether-based resin, with oxidative coupling catalyst, oxidative polymerization doing at least one kind of phenol compound which is displayed with formula below (II) with oxygen, or oxygen-containing gas it means resin which consists of (co) polymer which is acquired.

(In Formula, as for  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$  and  $R_5$ , being something which is chosen respectively from hydrogen atom, hydrocarbon group or substituted hydrocarbon group, among those as for 1 it is a hydrogen atom by all means.)

【0007】

It is possible to illustrate hydrogen, methyl, ethyl, *n*- or *iso*-propyl, *pri*-, *s*- or *t*-butyl, hydroxyethyl, phenylethyl, benzyl, hydroxymethyl, carboxy ethyl, methoxycarbonyl ethyl, cyanoethyl, phenyl, methylphenyl, dimethylphenyl, ethyl phenyl, allyl as  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$  and  $R_5$  in Formula (I).

【0008】

phenol, *o*-, *m*- or *p*- cresol, 2,6-, 2,5-, 2, 4- or 3 and 5 -dimethyl phenol, 2- methyl-6-phenyl phenol, 2,6-biphenyl phenol, 2,6-diethyl phenol, 2- methyl-6-ethyl phenol,

ルフェノール、2,6-ジフェニルフェノール、2,6-ジエチルフェノール、2-メチル-6-エチルフェノール、2,3,5-、2,3,6-又は 2,4,6-トリメチルフェノール、3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール、チモール、2-メチル-6-アリルフェノールを例示することができる。

これらのフェノール化合物の中では、2,6-ジメチルフェノール、2,6-ジフェニルフェノール、3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール及び 2,3,6-トリメチルフェノールが好ましい。

【0009】

式(I)で表されるフェノール化合物は、ビスフェノール-A、レゾルシン、ハイドロキノン、ノボラック樹脂で例示される多価ヒドロキシ芳香族化合物と共重合させてもよく、これらの共重合体も本発明にかかるポリフェニレンエーテル系樹脂に含まれるものとする。

【0010】

フェノール化合物を酸化(共)重合させるために用いられる酸化カップリング触媒は特に限定されず、重合能を有する如何なる触媒でも使用できる。

フェノール化合物を酸化(共)重合させてポリフェニレンエーテル系樹脂を製造する方法として、米国特許第 3306874 号公報、同第 3306875 号公報及び同第 3257357 号公報並びに特公昭 52-17880 号公報、特開昭 50-51197 号公報、特開平 1-304119 号公報に記載された製造方法を例示することができる。

【0011】

本発明で使用されるポリフェニレンエーテル系樹脂として、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジエチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-6-エチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-6-プロピル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジプロピル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-エチル-6-プロピル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジブチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジブロペンル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジラウリル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジフェニル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジメトキシ-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジエトキシ-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メトキシ-6-エトキシ-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-エチル-6-ステアリルオキシ-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-6-フェニル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-エトキシ-1,4-フェニレン

2,3,5-, 2,3,6- or 2, 4 and 6 -trimethyl phenol, 3-methyl-6-t-butyl it is possible as phenol compound which is displayed with Formula (I ), to illustrate phenol and thymol, 2- methyl-6-allyl phenol.

In these phenol compound, 2 and 6 -dimethyl phenol, 2,6-biphenyl phenol, 3- methyl-6-t-butyl phenol and 2, 3 and 6 -trimethyl phenol are desirable.

[0009]

It is possible to copolymerize phenol compound which is displayed with the Formula (1), with polyvalent hydroxy aromatic compound which is illustrated with bisphenol-A, resorcinol, hydroquinone, novolak resin, are included in polyphenylene ether-based resin where also these copolymer depend on this invention.

[0010]

oxidative coupling catalyst which is used in order oxidation (co ) polymerization to do phenol compound especially cannot be limited, can use any catalyst which possesses the polymerizing ability.

oxidation (co ) polymerization doing phenol compound, it is possible to illustrate the manufacturing method which is stated in U.S. Patent 3306874 disclosure, same No. 3306875 disclosure and same No. 3257357 disclosure and Japan Examined Patent Publication Sho 5 2- 17880 disclosure, Japan Unexamined Patent Publication Showa 50-51197 disclosure, Japan Unexamined Patent Publication Hei 1-304119 disclosure as the method which produces polyphenylene ether-based resin.

[0011]

As polyphenylene ether-based resin which is used with this invention, poly (2 and 6 -dimethyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -diethyl-1, 4- phenylene ether ),poly (2 -methyl-6-ethyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -methyl-6-propyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -dipropyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -ethyl-6-propyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -dibutyl-1, 4- phenylene ether ),poly (2 and 6 -di propenyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -dilauryl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -biphenyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -dimethoxy-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -diethoxy-1, 4- phenylene ether ),poly (2 -methoxy-6-ethoxy-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -ethyl-6-stearyl oxy-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -methyl-6-phenyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -methyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 -ethoxy-1, 4- phenylene ether ),poly (3 -methyl-6-t-butyl-1, 4- phenylene ether ), poly (2 and 6 -dibenzyl-1, 4- phenylene ether ), and, It is possible to illustrate various copolymer which include multiple kinds



エーテル)、ポリ(3-メチル-6-*t*-ブチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジベンジル-1,4-フェニレンエーテル)、及び、これらの樹脂を構成する繰り返し単位の複数種を含む各種の共重合体を例示することができる。

【0012】

更に、2,3,6-トリメチルフェノール、2,3,5,6-テトラメチルフェノールで例示される多置換フェノールと、2,6-ジメチルフェノールで例示される2置換フェノールとの共重合体も、本発明にかかるポリフェニレンエーテル系樹脂に含まれるものとする。

【0013】

前記のポリフェニレンエーテル系樹脂のうちで好ましいものは、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)及び2,6-ジメチルフェノールと2,3,6-トリメチルフェノールとの共重合体である。

【0014】

本発明で用いられるポリフェニレンエーテル系樹脂はまた、上記の(共)重合体にスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、*p*-メチルスチレン及びビニルトルエンで例示されるスチレン系化合物をグラフトさせて得られるグラフト共重合体であってもよく、かかるグラフト共重合体も本発明にかかるポリフェニレンエーテル系樹脂に含まれるものとする。

【0015】

本発明で使用されるポリフェニレンエーテル系樹脂としては、30 deg C のクロロホルム中で測定した固有粘度が 0.3~0.7dl/g のものが好ましく、より好ましくは 0.36~0.65dl/g、特に好ましくは 0.40~0.6dl/g である。

固有粘度が 0.3dl/g よりも小さい場合、耐衝撃性が低下する場合があり、一方、固有粘度が 0.7dl/g よりも大きい場合熔融時の流動性が低下し、成形加工性が低下する場合がある。

【0016】

本発明の成分(B)は、ポリアミド系樹脂であり、ラクタムあるいはアミノカルボン酸の重合及び等モル量の炭素原子 4~12 個を含む飽和脂肪族ジカルボン酸と炭素原子 2~12 個を含む脂肪族ジアミンとの結合により製造することができるホモポリアミド及びコポリアミド等から選ばれた一種又は二種以上のポリアミド樹脂である。

重合の際に所望に応じてジアミンを過剰に用いてポリアミド中のカルボキシル末端基よりアミン

of repeat unit which forms these resin.

【0012】

Furthermore, also multi substituted phenol and copolymer are illustrated with 2, 3 and 6 -trimethyl phenol, 2,3,5,6-tetramethyl phenol of disubstituted phenol which is illustrated with 2 and 6 -dimethyl phenol, are included in polyphenylene ether-based resin which depends on this invention.

【0013】

Desirable ones, are poly (2 and 6 -dimethyl-1, 4- phenylene ether ) and 2 and 6 -dimethyl phenol and 2, 3 and 6-trimethyl phenol copolymer among aforementioned polyphenylene ether-based resin.

【0014】

In addition as for polyphenylene ether-based resin which is used with this invention, is illustrated with styrene,  $\alpha$  graft doing styrenic compound which -methylstyrene, *p*-methylstyrene and vinyl toluene in above-mentioned (co ) polymer, it is good even with graft copolymer which is acquired, are included in polyphenylene ether-based resin where also this graft copolymer depends on this invention.

【0015】

inherent viscosity which was measured in chloroform of 30 deg C as polyphenylene ether-based resin which is used with this invention, those of 0.3 - 0.7 dl/g is desirable, it is a more preferably 0.36~0.65 dl/g, particularly preferably 0.40~0.6 dl/g.

When inherent viscosity it is small in comparison with 0.3 dl/g, there are times when impact resistance decreases, when on one hand, inherent viscosity it is large in comparison with 0.7 dl/g, flow property when melting decreases, there are times when molding property decreases.

【0016】

component (B) of this invention with polyamide resin, is polyamide resin of one, two or more kinds which is chosen from homo polyamide and copolyamide etc which can be produced with connection with saturated aliphatic dicarboxylic acid which includes carbon atom 4~12 of the polymerization and equimolar amount of lactam or amino carboxylic acid and aliphatic diamine which includes carbon atom 2~12.

Using diamine for excess case of polymerization according to desire, it gives amine end group to excess from carboxyl

末端基を過剰に与えることができる。

逆に、過剰の二塩基性酸を用いてポリアミドのカルボキシル基末端基がアミン末端基より過剰になるよう調整することもできる。

同様に、これらのポリアミドを該酸及びアミンの酸生成及びアミン生成誘導体、たとえばエステル、酸塩化物、アミン塩などからも良好に製造することができる。

このポリアミドを製造するために用いる代表的な脂肪族ジカルボン酸にはアジピン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、スベリン酸、セバシン酸及びドデカンジオン酸が含まれ、一方代表的な脂肪族ジアミンにはヘキサメチレンジアミン及びオクタメチレンジアミンが含まれる。

加えて、これらのポリアミドはラクタムの自己縮合により製造することができる。

【0017】

脂肪族ポリアミドの例には、ポリヘキサメチレンアジバミド(ナイロン 66)、ポリヘキサメチレンアゼラミド(ナイロン 69)、ポリヘキサメチレンセバサミド(ナイロン 610)、及びポリヘキサメチレンドデカノアミド(ナイロン 612)、ポリ-ビス-(p-アミノシクロヘキシル)メタンドデカノアミド、ポリテトラメチレンアジバミド(ナイロン 46、ナイロン 6、ナイロン 10、ナイロン 11、ナイロン 12、ナイロン 6/66)共重合体等が、またこれらのナイロンを二種以上任意の割合で使用してもよい。

【0018】

これらのポリアミドにあって好ましくはナイロン 46、ナイロン 6、ナイロン 66、ナイロン 11、ナイロン 12 などが用いられる。

より好ましくは、ナイロン 6、ナイロン 66 あるいはナイロン 6 とナイロン 66 との任意の比率の混合物が用いられる。

またこれらポリアミドの末端官能基はアミン末端の多いもの、カルボキシル末端の多いもの、両者がバランスしたもの、あるいはこれらの任意の比率の混合物が好適に用いられる。

【0019】

更に芳香族ポリアミドも含む。

たとえばポリヘキサメチレンイソフタルアミド(ナイロン 6I)の如き芳香族成分を含有するコポリアミドである。

かかる芳香族成分を含有する熱可塑性コポリアミドは芳香族アミノ酸及び/又は芳香族ジカルボン酸たとえば、パラアミノメチル安息香酸、パラ

endgroup in the polyamide, it is possible .

In order conversely, carboxyl endgroup basis of polyamide from amine end group to become excess making use of dibasic acid of excess, it can also adjust.

In same way, these polyamide can be produced satisfactorily even from acid production and amine formation derivative, for example ester, acid chloride, amine salt etc of said acid and the amine.

adipic acid, pimelic acid, azelaic acid, suberic acid, sebacic acid and dodecanedioic acid are included by representative aliphatic dicarboxylic acid which is used in order to produce this polyamide, on one hand hexamethylene diamine and octamethylene diamine are included in representative aliphatic diamine .

In addition, it can produce these polyamide with selfcondensation of lactam.

【0017】

polyhexamethylene adipamide (nylon 66 ), polyhexamethylene azelamide (nylon 6 9 ), polyhexamethylene sebacamide (nylon 610 ), and polyhexamethylene dodecanoamide (nylon 612 ), poly bis- (p-amino cyclohexyl ) methane dodecanoamide, poly tetramethylene adipamide (nylon 46, nylon 6, nylon 10, nylon 11, nylon 12, nylon 6/66 ) copolymer etc, in addition may use these nylon to example of aliphatic polyamide, at ratio of 2 kinds or more option.

【0018】

There being these polyamide, it can use preferably nylon 46, nylon 6, nylon 66, nylon 11, nylon 12 etc.

It can use of more preferably, nylon 6, nylon 66 or blend of ratio of option of the nylon 6 and nylon 66.

In addition as for terminal functional group of these polyamide those where amine terminal is many. Those where carboxy terminal is many. both balance those which are done. Or it can use for ideal blend of ratio of these option.

【0019】

Furthermore also aromatic polyamide includes.

It is a copolyamide which contains aromatic component like for example polyhexamethylene isophthalamide (nylon 6I ).

thermoplastic polyamide which contains this aromatic component means polyamide where melt polymerization which designates aromatic amino acid and/or aromatic

アミノエチル安息香酸、テレフタル酸、イソフタル酸などを主要構成成分とする溶融重合が可能なポリアミドを意味する。

【0020】

ポリアミドの他の構成成分となるジアミンはヘキサメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、2,2,4-2,4,4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、メタキシリレンジアミン、パラキシリレンジアミン、ビス(p-アミノシクロヘキシル)メタン、ビス(p-アミノシクロヘキシル)プロパン、ビス(3-メチル、4-アミノシクロヘキシル)メタン、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキササン、1,4-ビス(アミノメチル)シクロヘキササンなどを使用することができる。

またジアミンの代わりにイソシアネート類を用いることができる。

たとえば 4,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、トリレンジイソシアネートなどである。

【0021】

必要に応じて用いられる共重合成分は特に限定なく、ラクタムもしくは炭素原子 4~12 個の  $\omega$ -アミノ酸の単位、又は炭素原子 4~12 個の脂肪族ジカルボン酸、及び炭素原子 2~12 個の脂肪族ジアミンから誘導される化合物、たとえば、 $\epsilon$ -カプロラクタム、 $\omega$ -ラウロラクタム、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸などのラクタム、又はアミノ酸、前記した各種ジアミンとアジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸などとのモル塩などが利用できる。

【0022】

また、これらのポリアミドは結晶性であっても非晶性であってもよい。

更にこれらのポリアミドを任意の割合で混合してもよい。

【0023】

本発明で用いられる相容化剤(C)は、溶融混練過程において、(B)中に(A)を微分散させる目的で使用され、この目的を達成し得るものであれば特に制限はない。

【0024】

(C)は、(A)である熱可塑性樹脂と(B)であるポリアミド系樹脂は元来親和性が弱いため、同時に溶融混練してもポリフェニレンエーテル系樹脂の粒子が  $5\mu\text{m}$  より大きい粒子径でしか分散せず、十分な機械的物性を示さないという欠点を改良するために添加され、(A)の分散粒径を

dicarboxylic acid for example para aminomethyl benzoic acid、para aminoethyl benzoic acid、terephthalic acid、isophthalic acid etc as main constituent is possible.

【0020】

diamine which becomes other ingredient of polyamide can use hexamethylene diamine、undecamethylene diamine、dodecamethylene diamine、2,2, 4-2,4, 4- trimethyl hexamethylene diamine、meta xylylene diamine、para xylylene diamine、bis (p- amino cyclohexyl ) methane、bis (p- amino cyclohexyl ) propane、bis (3 -methyl、 4- amino cyclohexyl ) methane、1, 3- bis (aminomethyl ) cyclohexane、1, 4- bis (aminomethyl ) cyclohexane etc.

In addition isocyanates can be used in place of diamine.

It is a for example 4, 4'-diphenylmethane diisocyanate、toluene diisocyanate etc.

【0021】

according to need the;oa of lactam or carbon atom 4~12 compound、for example;ep where -amino acid is induced from aliphatic dicarboxylic acid、of unit、or carbon atom 4~12 and aliphatic diamine of carbon atom 2~12 -caprolactam、the;oa -lauro lactam、1 1- amino undecanoic acid、1 2- amino dodecanoic acid or other lactam、or mole salt etc of various diamine and adipic acid、azelaic acid、sebacic acid etc which before amino acid、were inscribed can utilize the copolymer component which is used without especially limitation.

【0022】

In addition、these polyamide with crystalline and are good with amorphous .

Furthermore it is possible to mix these polyamide at ratio of option.

【0023】

If it is something to which compatabilizer (C ) which is used with this invention is used with objective which microdispersing does (A ) in (B )、in the melt mixing process、can achieve this objective、there is not especially restriction.

【0024】

It is added in order to improve deficiency that (C )、because theoriginally affinity is weak、melt mixing doing simultaneously、it disperses polyamide resin which is a thermoplastic resin and a (B ) which are a (A ) with only particle diameter where particle of polyphenylene ether-based resin is larger than  $5\mu\text{m}$ 、shows the sufficient mechanical

微細化するものである。

## 【0025】

(A)成分が、ポリカーボネートである場合、(C)としては、たとえば、特開平 7-173282 号公報に記載されているように、ポリアミド/脂肪族ポリエステルブロック共重合体等が用いられる。

## 【0026】

(A)成分が、ポリエチレンテレフタレートである場合、(C)としては、たとえば、p-トルエンスルホン酸が用いられる。

## 【0027】

(A)成分が、ポリブチレンテレフタレートである場合、(C)としては、たとえば、特開平 6-256417 号公報に開示されているように、エポキシ変性スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体等が用いられる。

## 【0028】

(A)成分が、ポリフェニレンサルファイドである場合、(C)としては、たとえば、特開平 6-322259 号公報、特開平 7-316313 号公報に記載されているようにホルムアルデヒド基、アミノ基、アシルアミノ基、カルバメート基を有する共重合体、ポリアクリル酸-メタクリル酸メチルとポリスチレンマクロマー成分とのグラフト共重合体等が用いられる。

## 【0029】

(A)成分が、ポリエーテルスルホンの場合、(C)としては、たとえば米国特許 4798855 号公報に記載されているように水酸基を含有する高分子化合物が用いられる。

## 【0030】

(A)成分が、ポリアリレートの場合、(C)としては、たとえば、シリカ中に酸化亜鉛を均一に混合した触媒、特開平 6-106526 号公報に記載されている様に不飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸の誘導体、不飽和エポキシ化合物が用いられる。

## 【0031】

(A)成分が、アクリロニトリル-スチレン-ブタジエン樹脂の場合、(C)としては、たとえば、各種アクリル酸、特開平 6-256417 号公報に記載されているようにエポキシ変性スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体、特公平 7-84549 号公報に記載されているように、アクリロニトリル-スチレン-無水マレイン酸共重合体等が用いられる。

property, it is something which dispersed grain size of (A) narrowing is done.

## 【0025】

When (A) component, it is a polycarbonate, as stated in for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 7-173282 disclosure (C) as, it can use polyamide/aliphatic polyester block copolymer etc.

## 【0026】

When (A) component, it is a polyethylene terephthalate, it can use for example p-toluenesulfonic acid (C) as.

## 【0027】

When (A) component, it is a polybutylene terephthalate, as disclosed in for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-256417 disclosure (C) as, it can use epoxy modification styrene-butadiene-styrene copolymer.

## 【0028】

When (A) component, it is a polyphenylene sulfide, as stated in for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-322259 disclosure, Japan Unexamined Patent Publication Hei 7-31 6 31 3 disclosure (C) as, formaldehyde basis, it can use graft copolymer of copolymer, polyacrylic acid-methyl methacrylate and polystyrene macromer component which possess amino group, acyl amino group, carbamate group.

## 【0029】

When (A) component, it is a polyether sulfone, as stated in for example U.S. Patent 4798855 disclosure (C) as, it can use polymeric compound which contains hydroxy group.

## 【0030】

When (A) component, it is a polyarylate, as stated in catalyst, Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-106526 disclosure which mixes zinc oxide to uniform in for example silica (C) as, it can use derivative, unsaturated epoxy compound of the unsaturated carboxylic acid, unsaturated carboxylic acid.

## 【0031】

When (A) component, it is a acrylonitrile-styrene-syndiotactic 1,2-polybutadiene, as stated in for example various acrylic acid, Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-256417 disclosure (C) as, as stated in epoxy modification styrene-butadiene-styrene copolymer, Japan Examined Patent Publication Hei 7-84549 disclosure, it can use acrylonitrile-styrene-maleic anhydride

無水マレイン酸共重合体が用いられる。

【0032】

(A)成分が、ポリフェニレンエーテル系樹脂の場合、成分(C)相容化剤は、下記(C1)~(C3)で表される化合物である。

(C1):同一分子内に(i)少なくとも一種の不飽和基すなわち炭素-炭素二重結合又は炭素-炭素三重結合と(ii)少なくとも一種の極性基を併せ持つ化合物

(C2):分子構造中に、(i)酸素の架橋を介して炭素原子、及び(ii)少なくともエチレン性炭素-炭素二重結合若しくは炭素-炭素三重結合及び/又はアミノ基及びメルカプト基から選ばれる官能基の両方を有し、前記官能基がケイ素原子に直接結合されていないシリコン化合物

(C3):同一分子内に(i)(OR)(ここでRは水素又はアルキル、アリール、アシル又はカルボニルジオキシ基である。)及び(ii)カルボン酸、酸ハライド、酸無水物、酸ハライド無水物、酸エステル、酸アミド、イミド、アミノ及びこれらの塩から選ばれた少なくとも二つの同一又は相異なる官能基を併せ持つ化合物

【0033】

(C1)グループの相容化剤は、不飽和基すなわち炭素-炭素二重結合又は炭素-炭素三重結合と、極性基すなわちポリアミド樹脂中に含まれるアミド結合、連鎖末端に存在するカルボキシル基、アミノ基と親和性や、化学反応性を示す官能基を同一分子内に併せ持つ化合物である。

かかる官能基としては、カルボン酸基、カルボン酸より誘導される基すなわちカルボキシル基の水素原子あるいは水酸基が置換した各種の塩やエステル、酸アミド、酸無水物、イミド、酸アジド、酸ハロゲン化物、あるいはオキサゾリン、ニトリルなどの官能基、エポキシ基、アミノ基、水酸基、又は、イソシアン酸エステル基などがあげられ、不飽和基と極性基を併せ持つ化合物すなわち、不飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸誘導体、不飽和エポキシ化合物、不飽和アルコール、不飽和アミン、不飽和イソシアン酸エステルが用いられる。

具体的には、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、マレイミド、マレイン酸ヒドラジド、無水マレイン酸とジアミンの反応物たとえば、式

copolymer.

【0032】

When (A) component, it is a polyphenylene ether-based resin, component (C) compatibilizer description below (C1) - is compound which is displayed with (C3).

compound which has polar group of unsaturated group namely carbon-carbon double bond or the carbon-carbon triple bond and (ii) at least one kind of (i) at least one kind inside (C1): same molecule

In (C2): molecular structure, through crosslinking of (i) oxygen, carbon atom, and (ii) it possesses both of functional group which at least is chosen from the ethylenic carbon-carbon double bond or carbon-carbon triple bond and/or amino group and mercapto group, silane compound where aforementioned functional group direct bond is not made silicon atom

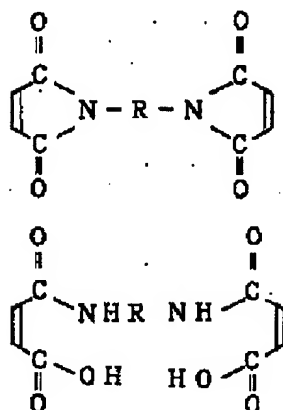
Inside (C3): same molecule (i) (OR) (R is hydrogen or alkyl, aryl, acyl or carbonyl dioxy group here.) and compound which at least has the identical or different functional group of two which is chosen from (ii) carboxylic acid, acid halide, acid anhydride, acid halide anhydride, acid ester, acid amide, imide, imide, amino and these salt

【0033】

Namely as for compatibilizer of (C1) group, unsaturated group namely carbon-carbon double bond or carbon-carbon triple bond and polar group it is a compound which has functional group which shows carboxyl group, amino group and affinity and chemical reactivity which exist in amide bond, linkage end which is included in polyamide resin inside same molecule.

As this functional group, you can list various salt and ester, acid amide, acid anhydride, imide, acid azido, acid halide, or oxazoline, nitrile or other functional group, epoxy group, amino group, hydroxy group, or isocyanate ester group etc which hydrogen atom or hydroxy group of group namely the carboxyl group which is induced substitutes from carboxylic acid group, carboxylic acid, compound namely, unsaturated carboxylic acid, unsaturated carboxylic acid derivative, unsaturated epoxy compound, unsaturated alcohol and unsaturated amine which have unsaturated group and polar group, you can use unsaturated isocyanate ester.

Concrete, reaction product for example system of maleic acid, maleic anhydride, fumaric acid, maleimide, maleic hydrazide, maleic anhydride and diamine



(ただし R は脂肪族、芳香族基を示す。)などで示される構造を有するもの、

無水メチルナジック酸、

無水ジクロロマレイン酸、

マレイン酸アミド、

イタコン酸、

無水イタコン酸、

大豆油、

桐油、

ヒマシ油、

アマニ油、

麻実油、

綿実油、

ゴマ油、

菜種油、

落花生油、

椿油、

オリーブ油、

ヤシ油、

イワシ油などの天然油脂類、

エポキシ化天然油脂類、

アクリル酸、

ブテン酸、

クロトン酸、

ビニル酢酸、

Those which possess structure which is shown with (However R shows aliphatic, aromatic group. ) etc.

methyl Nadic anhydride、

anhydride dichloro maleic acid、

maleic acid amide、

itaconic acid、

itaconic acid anhydride、

soybean oil、

tung oil、

castor oil、

linseed oil、

flaxseed oil、

cottonseed oil、

sesame oil、

rapeseed oil、

peanut oil、

Tsubaki oil、

olive oil、

palm oil、

sardine oil or other natural oils、

epoxidized natural oil、

acrylic acid、

butenoic acid、

crotonic acid、

vinyl acetic acid、

メタクリル酸、

ペンテン酸、アングリカ酸、チグリン酸、2-ペンテン酸、3-ペンテン酸、 $\alpha$ -エチルアクリル酸、 $\beta$ -メチルクロトン酸、4-ペンテン酸、2-ヘキセン、2-メチル-2-ペンテン酸、3-メチル-2-ペンテン酸、 $\alpha$ -エチルクロトン酸、2,2-ジメチル-3-ブテン酸、2-ヘプテン酸、2-オクテン酸、4-デセン酸、9-ウンデセン酸、10-ウンデセン酸、4-ドデセン酸、5-ドデセン酸、4-テトラデセン酸、9-テトラデセン酸、9-ヘキサデセン酸、2-オクタデセン酸、9-オクタデセン酸、アイコセン酸、ドコセン酸、エルカ酸、テトラコセン酸、ミコリペン酸、2,4-ヘキサジエン酸、ジアリル酢酸、ゲラニウム酸、2,4-デカジエン酸、2,4-ドデカジエン酸、9,12-ヘキサデカジエン酸、9,12-オクタデカジエン酸、ヘキサデカトリエン酸、アイコサジエン酸、アイコサトリエン酸、アイコサテトラエン酸、リシノール酸、エリオステアリン酸、オレイン酸、アイコサペンタエン酸、エルシン酸、ドコサジエン酸、ドコサトリエン酸、ドコサテトラエン酸、ドコサペンタエン酸、テトラコセン酸、ヘキサコセン酸、ヘキサコジエン酸、オクタコセン酸、トラアコンテン酸などの不飽和カルボン酸、あるいはこれらの不飽和カルボン酸のエステル、酸アミド、無水物、あるいはアリルアルコール、クロチルアルコール、メチルビニルカルビノール、アリルカルビノール、メチルプロピベニルカルビノール、4-ペンテン-1-オール、10-ウンデセン-1-オール、プロパルギルアルコール、1,4-ペンタジエン-3-オール、1,4-ヘキサジエン-3-オール、3,5-ヘキサジエン-2-オール、2,4-ヘキサジエン-1-オール、一般式  $C_nH_{2n-5}OH$ 、 $C_nH_{2n-7}OH$ 、 $C_nH_{2n-9}OH$ (ただし、 $n$  は正の整数)で示されるアルコール、3-ブテン-1,2-ジオール、2,5-ジメチル-3-ヘキセン-2,5-ジオール、1,5-ヘキサジエン-3,4-ジオール、2,6-オクタジエン-4,5-ジオールなどの不飽和アルコール、あるいはこのような不飽和アルコールの OH 基が、 $-NH_2$  基に置き換わった不飽和アミン、あるいはグリシジル(メタ)アクリレート、アリルグリシジルーエーテルなどがあげられる。

また、ブタジエン、イソプレンなどの低重合(たとえば平均分子量が 500 から 10000 ぐらいのもの)あるいは高分子量体(たとえば平均分子量が 10000 以上のもの)に無水マレイン酸、フェノール類を付加したもの、あるいはアミノ基、カルボン酸基、水酸基、エポキシ基などを導入したものの、イソシアン酸アリルなどがあげられる。

【0034】

本発明における同一分子内に不飽和基と極性基を併せ持つ化合物の定義には、不飽和基を 2 個以上、極性基を 2 個以上(同種又は異種)含ん

methacrylic acid、

pentenoic acid, angelica acid, tiglic acid, 2- pentenoic acid, 3- pentenoic acid,  $\alpha$ -ethyl acrylic acid, the;be -methyl crotonic acid, 4- pentenoic acid, 2- hexene, 2- methyl -2- pentenoic acid, 3- methyl -2- pentenoic acid, the;al -ethyl crotonic acid, 2, 2- dimethyl-3- butenoic acid, 2- heptenoic acid, 2- octenoic acid, 4- decenoic acid, 9-undecenoic acid, 10-undecenoic acid, 4- dodecene acid, 5 -dodecene theacid, 4 -tetradecenoic acid, 9-tetradecenoic acid, 9-hexadecenoic acid, 2- octadecenoic acid, 9-octadecenoic acid, eicosenoic acid, docosenoic acid, erucic OH group of alcohol, 3- butene-1, 2- diol, 2,5-dimethyl-3- hexene-2,5-diol, 1,5-hexadiene-3, 4- diol, 2,6-octadiene-4,5-diol or other unsaturated alcohol or this kind of unsaturated alcohol which is shown with (cis-13 docosenoic ) acid, tetracosenoic acid,  $\Xi$  coli pen acid, 2, 4- hexadienoic acid, diallyl acetic acid, geranic acid, 2, 4- decadienoic acid, 2, 4- dodecadienoic acid, 9,1 2- hexadecadienoic acid, 9,1 2- octadecadienoic acid, hexadecatrienoic acid, eicosadienoic acid, eicosatrienoic acid, eicosatetraenoic acid, ricinoleic acid, elaeostearic acid, oleic acid, eicosapentaenoic acid, erucic acid, docosadienoic acid, docosatrienoic acid, docosatetraenoic acid, docosapentaenoic acid, tetracosenoic acid, hexacosenoic acid, hexacosadienoic acid, octacosenoic acid, tetracontenoic acid or other unsaturated carboxylic acid, or ester, acid amide, anhydride, or the allyl alcohol, crotyl alcohol, methyl vinyl carbinol, allyl carbinol, methyl professional ビベニ jp11 carbinol, 4- pentene -1- ol, 10-undecene -1- ol, propargyl alcohol, 1, 4- pentadiene-3- ol, 1, 4- hexadiene-3- ol, 3,5-hexadiene -2- ol, 2, 4- hexadiene -1- ol, General Formula  $C_nH_{2n-5}OH$ ,  $C_nH_{2n-7}OH$ ,  $C_nH_{2n-9}OH$  (However, as for  $n$  positive integer ) of these unsaturated carboxylic acid,  $-NH_2$  unsaturated amine which isdisplaced in basis, Or you can list glycidyl (meth ) acrylate, allyl glycidyl ether etc.

In addition, butadiene, isoprene or other oligomerization (for example average molecular weight those about of 500 to 1 0000. ) or those which add maleic anhydride, phenols to high molecular weight product (for example average molecular weight those of 10,000 or greater. ). Or those which introduce amino group, carboxylic acid group, hydroxy group, epoxy group etc. You can list isocyanate allyl etc.

【0034】

Also it is possible, unsaturated group as for also compound which 2 or more (same kind or different kind )includes 2 or more, polar group being included, to go without saying in

だ化合物も含まれることは、いうまでもなく、また、二種以上の特定化合物を使うことも可能である。

これらの内で、好ましくは無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、無水イタコン酸、イタコン酸、グリシジル(メタ)アクリレートが、より好ましくは無水マレイン酸、フマル酸が用いられる。

#### [0035]

(C2)グループの相容化剤は、分子構造中に、ア)酸素の架橋を介して炭素原子に結合された少なくとも1つのケイ素原子、及びイ)少なくともエチレン性炭素-炭素二重結合若しくは炭素-炭素三重結合及び/又はアミノ基及びメルカプト基から選ばれる官能基、の両方を有し、前記官能基がケイ素原子に結合されていない、シラン化合物であり、ガンマアミノプロピトリエトキシシラン、2-(3-シクロヘキシル)エチルトリメキシシランなどが使用できる。

#### [0036]

(C3)グループの相容化剤は、アリファティックポリカルボン酸、酸エステル又は酸アミドであり、一般式 $(R_6O)_mR(COOR_7)_n(CONR_8R_9)_l$ (ここで、R は線状又は分岐状飽和アリファティック炭化水素であって2~20個、好ましくは2~10個の炭素原子を有するものであり、 $R_6$ は水素、アルキル基、アリール基、アシル基、又はカルボニルジオキシ基で特に好ましくは水素であり、 $R_7$ は水素、アルキル基、又はアリール基で炭素数1~20、好ましくは1~10であり、 $R_8$ 及び $R_9$ は水素、アルキル基、又はアリール基で炭素数1~10、好ましくは1~6、更に好ましくは1~4であり、 $m=1$ であり、 $n+1$ は2以上の整数、好ましくは2又は3であり、 $n$ は0以上の整数であり、 $l$ は0以上の整数であり、 $(R_6O)$ はカルボニル基の $\alpha$ 位又は $\beta$ 位に位置し、少なくとも2つのカルボニル基の間には、2~6個の炭素が存在するものである。)によって表される飽和脂肪族ポリカルボン酸及びその誘導体化合物。

(具体的には、飽和脂肪族ポリカルボン酸のエステル化合物、アミド化合物、無水物、水加物及び塩などを示す。飽和脂肪族ポリカルボン酸として、クエン酸、リンゴ酸、アガリシン酸などである。これらの化合物の詳細は、公表特許公報昭61-502195号公報に開示されている。)

#### [0037]

しかし、本発明における相容性改良剤は、ここに例示した化合物に限定されず、ポリフェニレンエーテル系樹脂とポリアミドの相容性を改良す

definition of compound which has unsaturated group and polar group inside same molecule in the this invention in addition, to use special compound of 2 kinds or more.

Among these, more preferably maleic anhydride, fumaric acid it can use preferably maleic anhydride, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid anhydride, itaconic acid, glycidyl (meth) acrylate.

#### [0035]

compatibilizer of (C2) group, in molecular structure, ア) through crosslinking of oxygen, silicon atom, and has both of functional group, which jp1) of at least one which is connected to carbon atom at least is chosen from the ethylenic carbon-carbon double bond or carbon-carbon triple bond and/or amino group and mercapto group, aforementioned functional group is not connected to silicon atom, with silane compound, You can use gamma amino professional  $\beta$  triethoxysilane, 2-(3-cyclohexyl) ethyl tri メキ silane etc.

#### [0036]

As for compatibilizer of (C3) group, with aliphatic polycarboxylic acid, acid ester or acid amide, the saturated aliphatic polycarboxylic acid and its derivative chemical compound which is displayed with General Formula  $(R_6O)_mR(COOR_7)_n(CONR_8R_9)_l$  (Here, as for R: 2-20, being something where preferably 2~10 has carbon atom with linear state or branched saturation aliphatic hydrocarbon, as for  $R_6$  with hydrogen, alkyl group, aryl group, acyl group, or the carbonyl dioxy group with particularly preferably hydrogen, as for  $R_7$  with hydrogen, alkyl group, or aryl group with carbon number 1~20, preferably 1~10, as for  $R_8$  and  $R_9$  with hydrogen, alkyl group, or the aryl group carbon number 1~10, preferably 1~6, furthermore with preferably 1~4, with  $m=1$ , as for the  $n+1$  with integer, preferably 2 or 3 of 2 or more, As for  $n$  with integer of 0 or greater, as for  $l$  with the integer of 0 or greater, as for  $(R_6O)$  is the;al position of carbonyl group or position of the;be position, it is something where, carbon 2-6 exists atleast between 2 carbonyl group. ).

(Concretely, ester compound, amide compound, anhydride, hydrate and salt etc of saturated aliphatic polycarboxylic acid are shown. As saturated aliphatic polycarboxylic acid, it is a citric acid, malic acid, agaric acid etc. Details of these compound are disclosed in Domestic Publication of PCT Application Showa 61-502195 disclosure. )

#### [0037]

But, compatibility modifier in this invention is not limited in compound which was illustrated here, if it is a compound which is used with objective which improves compatibility of



る目的で使用される化合物であればどれでもよく、単独又は複数の相容化剤を同時に使用してもよい。

なお、(C)としては、ポリフェニレンエーテルとの反応性や経済性の観点から、無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、クエン酸、リンゴ酸からなる群から選ばれる少なくとも一種が好ましい。

また、相容化剤をグラフトする際はラジカル開始剤を併用する方が好ましい。

ラジカル開始剤を使用することによりグラフト効率を向上させることができる。

ここで使用されるラジカル開始剤としては、有機ペルオキシド、有機ペルエステル及びアゾ化合物など公知のラジカル開始剤を使用することができる。

ラジカル開始剤を使用する場合に、この使用量は未変性のポリフェニレンエーテル系樹脂 100 重量部に対して、通常は 0.01~20 重量部である。

【0038】

成分(A)であるポリフェニレンエーテル系樹脂にこのような相容化剤をグラフト重合させる方法の例としては、ポリフェニレンエーテル系樹脂を溶媒に懸濁もしくは溶解させて、この懸濁液もしくは溶液にグラフト変性剤を添加してグラフト反応させる方法(溶液法)、及び、ポリフェニレンエーテル系樹脂とグラフト変性剤との混合物を溶融させながらグラフト反応させる方法(溶融法)等を挙げることができる。

またこれらのグラフト重合を予め行っておいて、残りの成分(B)を溶融混練プロセスで混ぜ合わせてもよい。

溶融混練法でグラフト重合を行なう場合は、ひとつの混練機を用いて連続した工程で残りの(B)を混ぜ合わせる方法が経済的には有利である。

また(B)以外の成分は(A)に(C)を溶融混練でグラフトする際に一緒に混練してもよい。

【0039】

本発明の樹脂組成物における(A)/(B)の重量比は 10/90~60/40 であり、好ましくは、15/85~55/45 である。

(A)が過少な場合、樹脂組成物の吸水率が高くなり、該樹脂組成物を非水電解質電池用ガスケット樹脂組成物として使用した場合、吸湿により

polyphenylene ether-based resin and polyamide, is good whichever, is possible to use compatibilizer of alone or plural simultaneously.

Furthermore, doing, as for (C), from reactivity of polyphenylene ether and the viewpoint of economy, at least one kind which is chosen from group which consists of maleic anhydride, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid, citric acid, malic acid is desirable.

In addition, when graft doing compatibilizer, method which jointly uses radical initiator is more desirable.

grafting efficiency it can improve by using radical initiator.

radical initiator of public knowledge such as organic peroxide, organic perester and azo compound can be used as radical initiator which is used here.

When radical initiator is used, this amount used is usually 0.01 - 20 parts by weight vis-a-vis unmodified polyphenylene ether-based resin 100 parts by weight.

【0038】

Suspension or melting polyphenylene ether-based resin in solvent as example of the method which graft polymerization does this kind of compatibilizer in polyphenylene ether-based resin which is a component (A), adding grafted medicine to this suspension or solution, the grafting reaction method which is done (solution method), and, While polyphenylene ether-based resin and melting blend of grafted medicine, method (melt method) etc which grafting reaction it does it is listed.

In addition doing these graft polymerization beforehand, it is possible to mix the remaining (B) with melt mixing process.

When graft polymerization is done with melt mixing method, method which mixes theremaining (B) from step which is continued making use of one kneader is profitable in economical.

In addition when in (A) graft doing (C) with melt mixing, it is possible to knead component other than (B) together.

【0039】

In resin composition of this invention, (A) / weight ratio of (B) with 10/90 -60/40, is preferably, 15/85~55/45.

When (A) is too little, moisture absorption of resin composition becomes high, when said resin composition you use, as gasket resin composition for nonaqueous electrolyte

寸法変化が生じ、漏液現象が発生する。

一方、(A)が過剰な場合、樹脂組成物の流動性が低下し、成形品(ガスケット)を得ることが困難となる。

【0040】

(C)の含有量は、(A)及び(B)の合計量 100 重量部に対して、0.01~10 重量部であり、0.01~5 重量部である。

(C)が過少であると(A)と(B)の相容性が低下し、耐衝撃強度が低下し、一方(C)が過剰であると耐熱安定性の低下や組成物の分解による剛性の低下が生じる。

【0041】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、使用されるべき樹脂成分を公知の方法で溶融混練することによって製造され得る。

溶融混練するに際しての成分の配合順序や溶融混練順序は任意であり、たとえば、全成分を一括して配合した後、該配合物を溶融混練する方法、全成分のうちの幾つかの成分とその残りの成分とをそれぞれ別々に配合し溶融混練した後、得られた該複数の混練物を一括して更に溶融混練する方法、押出機の上流側から下流側に沿ってフィード口を複数個有する一台の押出機において、各フィード口から各成分を順次にフィードして該押出機中で溶融混練する方法、を例示し得る。

好ましい溶融混練方法として、(C)を予めグラフトした(A)及び(B)を一括してフィードし溶融混練によって混合する方法、又は、2 個のフィード口を有する押出機の上流側のフィード口から(C)及び(A)をフィードし、これよりも下流側にあるフィード口から(B)をフィードし、溶融混練によって混合する方法、が経済的に有利な方法である。

【0042】

本発明の樹脂組成物は、(B)が連続相を形成し、(A)が分散相を形成している必要がある。

(A)が連続相を形成した場合、流動性が不十分となる。

分散相の平均粒子径は、 $5\mu\text{m}$  以下である必要があり、更に好ましくは、 $3\mu\text{m}$  以下である。

該平均粒子径が、 $5\mu\text{m}$  よりも大きい場合、引張

battery dimensional deformation occurs due to absorbed moisture, leaked liquid phenomena occurs.

On one hand, (A) excess when, flow property of resin composition decreases, the molded article (gasket) is obtained, becomes difficult.

[0040]

content of (C), with 0.01 - 10 parts by weight, is 0.01 - 5 parts by weight vis-a-vis total amount 100 parts by weight of (A) and (B).

When (C) is too little, when compatibility of (A) and (B) decreases, impact resistance decreases, (C) is excess on one hand, decrease of stiffness occurs with decrease of heat resistance stability and disassembly of composition.

[0041]

thermoplastic resin composition of this invention melt mixing does resin component which it should use with known method, it can be produced by.

When melt mixing it does, as for blending order and melt mixing order of component with option, lumping together for example all components, after combining, the method melt mixing of doing said combination. Method of combining several component and remaining among all components respectively and separately melt mixing after doing, lumping together kneaded substance of said plural which is acquired and furthermore melt mixing doing. From each feed port feed designating each component as sequential in the extruder of single platform which plurality possesses feed port from upstream side of extruder alongside downstream side, in said extruder melt mixing method of doing. It can illustrate.

As desirable melt mixing method, lumping together (A) and (B) which the graft does (C) beforehand, method feed of doing and mixing with melt mixing. Or, method feed of doing (C) and (A) from feed port of the upstream side of extruder which possesses feed port of 2 feed doing the (B) from feed port which is downstream side, in comparison with this mixing with melt mixing. Is beneficial method in economical.

[0042]

As for resin composition of this invention, (B) forms continuous phase, it is necessary for (A) to form dispersed phase.

When (A) formed continuous phase, flow property becomes insufficient.

average particle diameter of dispersed phase has necessity to be  $5\mu\text{m}$  or less, furthermore it is a preferably,  $3\mu\text{m}$  or less.

When said average particle diameter, it is large in comparison

伸び、衝撃強度が低下する。

【0043】

本発明の熱可塑性樹脂組成物に耐衝撃性を付与する目的でエラストマーを含有させることができる。

その具体例としては、天然ゴム、ブタジエン重合体、イソプレン重合体、クロロブタジエン重合体、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体、イソブチレン重合体、イソブチレン-ブタジエン共重合体、イソブチレン-イソプレン共重合体、アクリル酸エステル重合体、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-プロピレン-非共役ジエン共重合体、チオコールゴム、多硫化ゴム、ポリウレタンゴム、ポリエーテルゴム(たとえば、ポリプロピレンオキシドなど)、エピクロロヒドリンゴム、ステレン-ブタジエン共重合体、その部分水添物などがあげられる。

【0044】

これらのゴム状物質は、いかなる重合法(たとえば乳化重合、溶液重合)、いかなる触媒(たとえば過酸化物、トリアルキルアルミニウム、ハロゲン化リチウム、ニッケル系触媒)で作られたものでもよい。

更に、各種の架橋度を有するもの、各種の割合のミクロ構造を有するもの(たとえばシス構造、トランス構造、ビニル基など)も使用される。

また、共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体など、各種の共重合体はいずれも使用することができる。

更に、部分変性したゴム状物質を用いることもでき、たとえば、ヒドロキシ又はカルボキシ-末端変性ポリブタジエンなどがあげられる。

【0045】

本発明の熱可塑性樹脂組成物には、(A)と相容するアルケニル芳香族系樹脂を添加することができる。

(A)と相容するアルケニル芳香族系樹脂を本発明の熱可塑性樹脂組成物に添加した場合、(A)及びアルケニル芳香族系樹脂が分散相を形成する。

【0046】

本発明の熱可塑性樹脂組成物には、上記成分の他にその物性を損なわない限りにおいて、その目的に応じて樹脂の混練時、成形時に、慣用の他の添加剤、たとえば顔料、染料、他の充填

with 5;mu m , elongation、 impact strength decreases.

【0043】

elastomer can be contained with objective which grants impact resistance to thermoplastic resin composition of this invention.

As embodiment, natural rubber、 butadiene polymer、 isoprene polymer、 chlorobutadiene polymer、 butadiene-acrylonitrile copolymer、 isobutylene polymer、 isobutylene-butadiene copolymer、 isobutylene-isoprene copolymer、 acrylic acid ester polymer、 ethylene-propylene copolymer、 ethylene-propylene-unconjugated diene copolymer、 thiocol rubber、 polysulfide rubber、 polyurethane rubber、 polyether rubber (for example polypropylene oxide etc), you can list partially hydrogenated product etc of epichlorohydrin rubber、 styrene-butadiene copolymer、 .

【0044】

These rubbery substance what polymerization method (for example emulsion polymerization、 solution polymerization ), may be something which was made with what catalyst (for example peroxide、 trialkyl aluminum、 lithium halide、 nickel catalyst ).

Furthermore, those which possess various degree of crosslinking. Also thing (for example cis structure、 transomer structure、 vinyl group etc) which possesses microstructure of various ratios is used.

In addition, as for copolymer, in each case can use, various copolymer such as random copolymer、 block copolymer、 graft copolymer .

Furthermore, it is possible also, can list for example hydroxy or carboxy-terminal modified polybutadiene etc to use rubbery substance which portion modified is done.

【0045】

(A ) With phase you forgive in thermoplastic resin composition of this invention, る alkenyl aromatic type resin is added is possible .

(A ) With phase you forgive, when る alkenyl aromatic type resin is added to thermoplastic resin composition of this invention, (A ) and alkenyl aromatic type resin forms dispersed phase.

【0046】

If in thermoplastic resin composition of this invention, property is not impaired toother than above-mentioned component, at time of kneading of the resin, usual other additive、 for example pigment、 dye、 other filler、 heat

剤、耐熱剤、耐候剤、滑剤、離型剤、結晶核剤、可塑剤、流動性改良剤、帯電防止剤、安定剤などを添加することができる。

【0047】

上記安定剤としては、特に限定されず、慣用の全ての安定剤があげられる。

上記安定剤は、熱安定剤、酸化防止剤、光安定剤、更には、重合禁止剤などを含む。

【0048】

本発明の非水電解質電池封口ガスケットは、上記の樹脂組成物から、射出成形等の方法で成形される。

該ガスケットは、耐熱性が高く、かつ吸水率が低いため、ショートによる発熱時あるいは高温多湿の環境に放置した際の変形が小さく、従来のポリプロピレン性及びポリアミド性のガスケットと比較して、漏液性が著しく改善される。

【0049】

本発明の樹脂組成物は、上記の優れた特徴を有するものであり、非水電解質電池封口ガスケットとして用いることができ、該ガスケットを用いた非水電解質電池を得ることができる。

【0050】

【実施例】

以下、実施例により本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

表 1 に示す割合で第 1 フィード口及びそれよりも下流側にある第 2 フィード口から、原料を投入し、シリンダー温度 280 deg C に設定した東芝機械社製 TEM50 二軸混練機にて熔融混練した。

こうして得たペレットを下記の方法によって試験し、曲げ弾性率、耐熱性、流動性、吸水率及び平均分散粒子径を測定した。

【0051】

実施例においては次の化合物を使用した。

[成分(A)]

resistant agent、antiweathering agent、lubricant、mold release、crystal nucleating agent、plasticizer、flow improver、antistatic agent、stabilizer etc can be added when forming, in, according to objective.

【0047】

As above-mentioned stabilizer, especially it is not limited, can increase usual all stabilizer.

Above-mentioned stabilizer, heat stabilizer、antioxidant、photostabilizer、furthermore, includes polymerization inhibitor etc.

【0048】

nonaqueous electrolyte battery sealing gasket of this invention, from above-mentioned resin composition, forms with injection molding or other method.

As for said gasket, heat resistance is high, at same time because the moisture absorption is low, case where with short it leaves at time of heat emission or environment of heat and humidity deformation is small, by comparison with conventional polypropylene characteristic and gasket of polyamide type, the leakage is considerably improved.

【0049】

resin composition of this invention being something which possesses feature where description above is superior, be able to use, as nonaqueous electrolyte battery sealing gasket can acquire nonaqueous electrolyte battery which uses said gasket.

【0050】

[Working Example(s)]

this invention furthermore is explained in detail below, with Working Example, but this invention is not something which is limited in these.

second feed port which to downstream side is in comparison with first feed port and that and others, threw starting material at ratio which is shown in Table 1, melt mixing did with Toshiba Machine Co. Ltd. (DB 69-055-0983) supplied TEM50 twin shaft kneader which is set to cylinder temperature 280 deg C.

In this way, pellet which is acquired was tested with the below-mentioned method, flexural modulus, heat resistance, flow property, moisture absorption and average dispersed particle diameter were measured.

【0051】

Following compound was used regarding Working Example.

[component (A)]

JP2001196038A

2001-7-19

PPE:(ポリフェニレンエーテル)固有粘度(クロロホルム、25 deg C)0.46dl/gのポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテル

[成分(B)]

PA:商品名「CM3001」、東レ社製、ナイロン 66 樹脂

[成分(C)]

MAH:無水マレイン酸

[(他)成分]

PO:商品名「パーカドックス 14/40C」、化薬アクゾ社製、有機過酸化化物

ゴム:(スチレン-アクリロニトリル)-グラフト-エチレン-プロピレン-共役ジエンゴム

PP:プロピレンホモポリマー部分の Q 値が 4.0、エチレン-プロピレンランダムコポリマー含量=22 重量%、エチレン-プロピレンランダムコポリマー中のエチレン含量 45 重量%、 $[\eta]_{EP}=7$ 、 $[\eta]_P=1.9$ 、MFR(測定条件:230 deg C、荷重 21.2N)=1.5、であるプロピレン-エチレンブロックコポリマー

STAB:商品名「MARK PEP-36」、旭電化社製、リン系安定剤

[0052]

PPE: (polyphenylene ether) inherent viscosity (chloroform, 25 deg C ) poly (2 and 6 -dimethyl-1,4-phenylene ) ether of 0.46 dl/g

[component (B )]

PA: tradename "CM3001 ", Toray Industries Inc. (DB 69-053-5422 ) supplied、 nylon 66 resin

[component (C )]

MAH: maleic anhydride

[(Other things) component ]

PO: tradename "Perkadox 14/40C ", Kayaku Akzo Corporation (DB 69-062-3889 ) supplied、 organic peroxide

rubber: (styrene-acrylonitrile )

-graft-ethylene-propylene-conjugated diene rubber

Q of PP: propylene homopolymer part 4.0, ethylene content 45 weight%, in ethylene-propylene random copolymer content=22 wt%, ethylene-propylene random copolymer  $[\eta]_{EP}=7$ ,  $[\eta]_P=1.9$ , MFR (measurement condition:230 deg C、 load 21.2N ) = 1.5, propylene-ethylene block copolymer which is

ST AB: tradename "Mark PEP-36 ", Asahi Denka Kogyo K.K. (DB 69-057-1187 ) supplied、 phosphorus type stabilizer

[0052]

評価方法は下記のとおりである。	
evaluation method is below-mentioned sort.	
耐熱性評価	
heat resistance evaluation	
使用して、荷重0.45Nでの熱変形温度を測定した。	
Using, it measured heat distortion temperature with load 0.45N.	
曲げ弾性率、曲げ強度の評価	
evaluation of flexural modulus、 flexural strength	

使用して 23 deg C における曲げ弾性率及び曲げ強度を測定した。

衝撃強度の評価

ASTM D256 に準拠し、3.2mm 厚の試験片を使用して、23 deg C におけるノッチ付きのアイゾッド

Using, it measured flexural modulus and flexural strength in 23 deg C.

evaluation of impact strength

It conformed to ASTM D256, used test piece of 3.2 mm thickness, it measured Izod impact strength of notched in 23

衝撃強度を測定した。

流動性の評価

ASTM D1238 に準拠し、熱風オープン中 100 deg C で 2 時間乾燥後、280 deg C、49N 荷重でのメルトフローレート(MFR)を測定した。

MFR の値が、大きいほど流動性が良好であることを示す。

吸水率の評価

温度 23 deg C、湿度 50%の状態 で 24 時間状態調節した ASTM1 号引張試験片を用い、温度 80 deg C、湿度 90%の条件下に試験片を置き、72 時間後の重量変化を測定し、下記式に従い吸水量を測定した。

吸水量率(%)=(試験後試験片質量-試験前試験片質量)/試験前試験片質量 × 100

平均分散粒子径の測定及び連続相の判定

厚さ 3.2mm のガスケット用樹脂組成物からなるテストピースを水冷しながら、1200 番のサンドペーパーにて研磨した。

研磨面をクロロホルムで 30 分エッチングし、(A)成分を溶解させた。

これを走査型電子顕微鏡にて撮影し、その写真から無作為に抽出した 20 個の粒子の直径を測定し、それらの平均値を平均分散粒子径とした。

楕円形の粒子については、 $d=(\text{長径}+\text{短径})/2$  から求められる  $d$  を粒子の直径とした。

ここで短径とは、長径の中心を通る長径に対して垂直な線が楕円形と交差する 2 点間の距離である。

同時に連続相の成分が(A)成分であるか(B)成分であるかを写真から判定した。

[0053]

実施例 1~3 及び比較例 1

表 1 及び表 2 に示す割合で第 1 フィードロより PPE、MAH 及び PO の混合物を、それより下流側にある第 2 フィードロから、PA を投入し、シリンダー温度 280 deg C に設定した東芝機械製 TEM50 二軸混練機にて熔融混練を行い樹脂組成物を得た。

deg C.

evaluation of flow property

It conformed to ASTM D1238, 2 hours drying later, measured melt flow rate (MFR) with 280 deg C、49N load with 100 deg C in hot air oven.

When value of MFR, is large, flow property is satisfactory, it shows.

evaluation of moisture absorption

test piece was put under condition of temperature 80 deg C、humidity 90% making use of ASTM 1 number tensile test piece which 24 hours condition regulation is done with state of temperature 23 deg C、humidity 50%, the weight change of 72 hours later was measured, amount of absorbed water was measured in accordance with below-mentioned formula.

amount of absorbed water ratio (%) = (After testing before test piece mass- testing test piece mass) / before testing test piece mass X 100

Of average dispersed particle diameter and decision of continuous phase

While water cooling doing test piece which consists of resin composition for the gasket of thickness 3.2 mm, it ground with 1200th sandpaper.

polished surface 30 min etching was done with chloroform, (A) component was melted.

This was photographed with scanning electron microscope, diameter of 20 particle which from photograph are extracted in random was measured, those mean were redesignated as average dispersed particle diameter.

Concerning particle of elliptical,  $d=(\text{long diameter}+\text{short diameter})/2$  which is sought from 2 was designated as diameter of particle.

short diameter, perpendicular line elliptical is distance between 2 points which are crossed here vis-a-vis long diameter which passes by center of the long diameter.

It decided from photograph whether component of continuous phase is (A) component simultaneously, or is (B) component.

[0053]

Working Example 1~3 and Comparative Example 1

From second feed port which to downstream side is blend of PPE、MAH and the PO, in comparison with that from first feed port, PA was thrown atratio which is shown in Table 1 and Table 2, Toshiba Machine Co. Ltd. which is set to the cylinder temperature 280 deg C (DB 69-055-0983) make melt mixing was done with TEM50 twin shaft kneader and

組成物を得た。

得られた樹脂組成物をシリンダー温度 290 deg C、金型温度 80 deg C の条件で射出成形したテストピースを用い耐熱性、曲げ弾性率、曲げ強度、衝撃強度及び吸水率を測定した。

また、樹脂組成物の流動性を測定した。

更に分散相である PPE の平均分散粒子径を測定した。

結果を表 1 及び表 2 に示す。

【0054】

比較例 2

PA をシリンダー温度 290 deg C、金型温度 80 deg C の条件で射出成形したテストピースを用い耐熱性、曲げ弾性率、曲げ強度、衝撃強度及び吸水率を測定した。

また、流動性を測定した。

結果を表 2 に示す。

【0055】

比較例 3

PP をシリンダー温度 230 deg C、金型温度 50 deg C の条件で射出成形したテストピースを用い耐熱性、曲げ弾性率、曲げ強度、衝撃強度及び吸水率を測定した。

結果を表 2 に示す。

【0056】

【表 1】

resin composition was acquired.

heat resistance, flexural modulus, flexural strength, impact strength and moisture absorption were measured resin composition which it acquires making use of test piece which injection molding is done with condition of the cylinder temperature 290 deg C, mold temperature 80 deg C.

In addition, flow property of resin composition was measured.

Furthermore average dispersed particle diameter of PPE which is a dispersed phase was measured.

Result is shown in Table 1 and Table 2.

【0054】

Comparative Example 2

heat resistance, flexural modulus, flexural strength, impact strength and moisture absorption were measured PA making use of the test piece which injection molding is done with condition of cylinder temperature 290 deg C, mold temperature 80 deg C.

In addition, flow property was measured.

Result is shown in Table 2.

【0055】

Comparative Example 3

heat resistance, flexural modulus, flexural strength, impact strength and moisture absorption were measured PP making use of the test piece which injection molding is done with condition of cylinder temperature 230 deg C, mold temperature 50 deg C.

Result is shown in Table 2.

【0056】

[Table 1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3
配合 (重量部)			
(A)PPE	20	35	45
(B)PA	75	60	50
(C)MAH	0.3	0.5	0.7
(他)マ	5	5	5
(他)PO	0.04	0.04	0.04
(他)STAB	0.1	0.1	0.1
(A)の平均分散粒子径 $\mu\text{m}$	0.7	0.9	1.0
連続相	(B)	(B)	(B)
評価			
耐熱性 $^{\circ}\text{C}$	210	205	203
曲げ弾性率 MPa	2490	2432	2350
曲げ強度 MPa	100	98	96
耐衝撃強度 $\text{KJ}/\text{m}^2$	9.3	11.8	11.2
流動性 21.2N			
MFR g/10min	22	16.2	14
吸水率 %	4.3	3.2	2.6

【0057】

【0057】

【表 2】

[Table 2]

	比較例 1	比較例 2	比較例 3
配合 (重量部)			
(A)PPE	35		
(B)PA	60	100	
(C)MAH			
(他)マ	5		
(他)PO			
(他)PP			100
(他)STAB	0.1		
(A)の平均分散粒子径 $\mu\text{m}$	10	—	—
連続相	(B)	—	—
評価			
耐熱性 $^{\circ}\text{C}$	203	220	106
曲げ弾性率 MPa	2377	2900	—
曲げ強度 MPa	61	115	28
耐衝撃強度 $\text{KJ}/\text{m}^2$	1.7	4.6	75
流動性 49N			
MFR g/10min	8.8	112	—
吸水率 %	3.3	6.6	0

【0058】

【0058】

【発明の効果】

[Effects of the Invention]

以上説明したとおり、本発明により、非水電解質電池の金属ケース(正極管)と封口板(負極端子板)の間を絶縁状態に密閉する封口ガasketであって、耐熱性及び耐水性に優れたガasket

As above explained, metal case of nonaqueous electrolyte battery (positive electrode tube) with with sealing gasket which closes airtight between sealing plate (negative electrode terminal sheet) in insulating state, nonaqueous



ットを提供することができる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いて得られる非水電解質電池封口ガスケット及び該ガスケットを用いた非水電解質電池を提供することができた。

【図面の簡単な説明】

【図1】

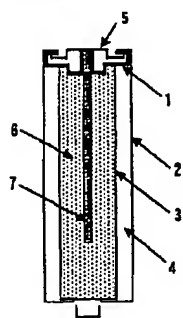
非水電解質電池の断面の概略を示す図の例である。

【符号の説明】

- 1
- ガスケット
- 2
- 正極管
- 3
- セパレーター
- 4
- 正極剤
- 5
- 負極端子板
- 6
- 負極活物質
- 7
- 集極棒

Drawings

【図1】



electrolyte battery sealing gasket which is acquired making use of resin composition, said resin composition which can offer the gasket which is superior in heat resistance and water resistance and nonaqueous electrolyte battery which uses the said gasket are offered was possible with this invention .

[Brief Explanation of the Drawing(s)]

[Figure 1]

It is an example in figure which shows outline of cross section of nonaqueous electrolyte battery.

[Explanation of Symbols in Drawings]

- 1
- gasket
- 2
- positive electrode tube
- 3
- separator
- 4
- positive electrode agent
- 5
- negative electrode terminal sheet
- 6
- negative electrode active material
- 7
- Collection polar rod

[Figure 1]

